

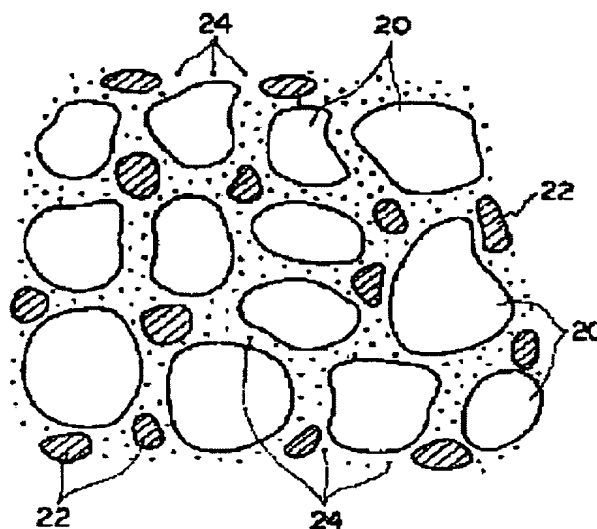
ELECTRODE FOR ELECTRICAL DOUBLE LAYER CAPACITOR

Patent number: JP10004037
Publication date: 1998-01-06
Inventor: KAWAMOTO KOJI
Applicant: TOYOTA MOTOR CORP
Classification:
- **international:** H01G9/058
- **european:**
Application number: JP19960155656 19960617
Priority number(s):

Abstract of JP10004037

PROBLEM TO BE SOLVED: To lessen an electric double layer capacitor in internal resistance without decreasing it in electrostatic capacity by a method wherein the electrode of the electric double layer capacitor is formed of active carbon, binding agent, and a specific amount of a conductive agent mixture of carbon black and graphite mixed at a specific ratio.

SOLUTION: Electrodes of an electrical double layer capacitor are formed of a mixture of active carbon particles 20, graphite particles 22, and carbon black particles 24. Graphite particles and carbon black particles are mixed together at such a ratio that 30 to 80wt.% of carbon black particles are mixed to graphite particles, and 5 to 30wt.% of the mixture of carbon black and graphite is contained in the electrode. Moreover, polytetrafluoroethylene is used as binding agent used for binding active carbon particles, carbon black particles, and graphite particles all together. Carbon black particles 24 tens to hundreds of nm in grain diameter are capable of penetrating between active carbon particles 20 and graphite particles 22 so as to improve the electrode in conductivity.



Data supplied from the **esp@cenet** database - Patent Abstracts of Japan

Best Available Copy

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平10-4037

(43) 公開日 平成10年(1998) 1月6日

(51) Int.Cl.⁶

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

H 0 1 G 9/058

H 0 1 G 9/00

3 0 1 A

審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 5 頁)

(21) 出願番号 特願平8-155656

(22) 出願日 平成8年(1996) 6月17日

(71) 出願人 000003207

トヨタ自動車株式会社

愛知県豊田市トヨタ町1番地

(72) 発明者 川本 浩二

愛知県豊田市トヨタ町1番地 トヨタ自動車株式会社内

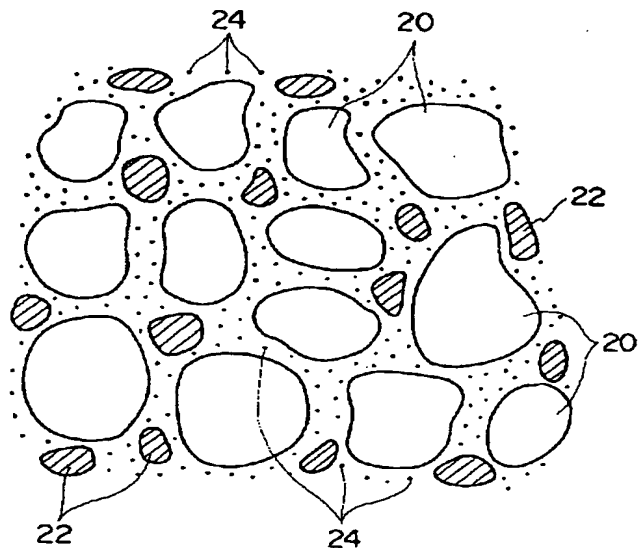
(74) 代理人 弁理士 吉田 研二 (外2名)

(54) 【発明の名称】 電気二重層キャパシタ用電極

(57) 【要約】

【課題】 静電容量を低下させずに電気二重層キャパシタの内部抵抗を低くすることができ、エネルギー密度を向上することができる電気二重層キャパシタ用電極を提供する。

【解決手段】 電気二重層キャパシタ用電極を形成する際に、活性炭粒子20と共に黒鉛粒子22とカーボンブラック粒子24との混合物を混ぜ合わせた。この際、黒鉛粒子22とカーボンブラック粒子24との混合比を所定の割合にすると、電極の抵抗を大きく下げることができる。このため、導電化材の量を増やさなくても電極の抵抗を減らすことができ、電気二重層キャパシタの静電容量を高く維持することができる。これにより、エネルギー密度を向上できる。



【特許請求の範囲】

【請求項 1】 活性炭と導電化材と結着剤とから構成される電気二重層キャパシタ用電極であって、前記導電化材としてカーボンブラックと黒鉛との混合物が 5～30 重量%含まれ、前記混合物中の黒鉛に対するカーボンブラックの割合が 30～80 重量%であることを特徴とする電気二重層キャパシタ用電極。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、エネルギー貯蔵に用いられる電気二重層キャパシタに使用される電極の改良に関する。

【0002】

【従来の技術】電気二重層キャパシタは、電極と電解液との界面で形成される電気二重層を利用するものであり、比較的静電容量が大きくバックアップ用電源等に用いられている。

【0003】図 5 には、従来における電気二重層キャパシタの構造の断面図が示される。図 5 において、一対の集電体 10、12 が設けられており、各集電体 10、12 には、正負の電極 14、16 が設けられている。

【0004】これらの電極 14、16 は、活性炭に電極の導電性を向上させるための導電化材を加え、ポリテトラフルオロエチレン (PTFE) 等を結着剤として、集電体 10、12 としてのアルミニウム箔等に担持させた構造となっている。このような正負の電極 14、16 の間には、セパレータ 18 が介在されており、電極 14、16 及びセパレータ 18 には電解液が含浸されている。

【0005】特開昭 62-229819 号公報には、導電化材として黒鉛あるいはカーボンブラックを使用した電気二重層キャパシタの電極の例が開示されている。本従来例においては、黒鉛あるいはカーボンブラックを使用し、電極 14、16 の抵抗を下げることで電気二重層キャパシタの内部抵抗の低減を図っている。

【0006】このような電気二重層キャパシタの静電容量は、活性炭の量を多くすることにより増加するが、これに加えて、電極の抵抗を下げて、内部抵抗を低減すれば活性炭へのイオンの吸着性が向上し、これによっても静電容量が増加する。電気二重層キャパシタでは静電容量が高く、内部抵抗が低いほどエネルギー密度を向上することができる。エネルギー密度を向上できれば電気二重層キャパシタの小型化、軽量化が図れ、特に車載用等に有用である。

【0007】従って、電気二重層キャパシタ用電極に使用される導電化材としては、使用量を多くしなくても電極の抵抗を下げるができるものが望ましい。電極中の導電化材の使用量を減らせれば、それだけ活性炭の量を多くでき、その際電極の抵抗が低ければ、エネルギー密度を向上できるからである。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】しかし、上記従来の電極 14、16 においては、導電化材としてカーボンブラックあるいは黒鉛が通常単独で用いられている。カーボンブラックの場合は、それ自体の抵抗率が $10^{-1} \Omega \text{cm}$ であって、導電性がさほど高いとはいえず、電気二重層キャパシタの内部抵抗を下げるためにはカーボンブラックの使用量を多くしなければならないので、活性炭の量が相対的に減少して静電容量が低下するという問題があった。

【0009】また、黒鉛の場合には、黒鉛を形成するグラファイト層が規則正しく配向しているために、その抵抗率が $10^{-2} \sim 10^{-3} \Omega \text{cm}$ と低く導電性が高い。しかし、黒鉛はその粒径が数 μm であるため活性炭粒子間の細部まで入り込むことができず、電極 14、16 の抵抗を十分下げることができないという問題があった。この様子が図 6 に示される。

【0010】図 6 において、活性炭粒子 20 と黒鉛粒子 22 とを混合した場合、活性炭の粒径が数 μm ～数十 μm であるのに対し、黒鉛粒子 22 の粒径は数 μm であるため、上述の通り、活性炭粒子 20 の間に黒鉛粒子 22 が十分入り込むことができず、活性炭粒子 20 と黒鉛粒子 22 との接触面積を十分に確保することができない。このため、電極 14、16 として活性炭に黒鉛を単独で混合した場合には、活性炭にカーボンブラックを単独で混合した場合に比べかえって電極 14、16 の抵抗が高くなり、電気二重層キャパシタの内部抵抗を下げるができないという結果になっていた。

【0011】これに対しては、抵抗率の低い黒鉛粒子 22 の粒径を小さくして活性炭粒子 20 の隙間に入り込める程度の微粒にすることも考えられる。しかし、粉碎等により黒鉛粒子 22 を微細化していくと、黒鉛を形成するグラファイト層の間で層間のずれが起こり黒鉛構造が歪んでしまうので抵抗率が上昇してしまう。このため、黒鉛粒子 22 を微粒化することは適切とはいえない。

【0012】本発明は上記従来の課題に鑑みなされたものであり、その目的は、静電容量を低下させずに電気二重層キャパシタの内部抵抗を低くすることができ、エネルギー密度を向上することができる電気二重層キャパシタ用電極を提供することにある。

【0013】

【課題を解決するための手段】上記目的を達成するために、本発明は、活性炭と導電化材と結着剤とから構成される電気二重層キャパシタ用電極であって、導電化材としてカーボンブラックと黒鉛との混合物が 5～30 重量%含まれ、この混合物中の黒鉛に対するカーボンブラックの割合が 30～80 重量%であることを特徴とする。

【0014】

【発明の実施の形態】以下、本発明の好適な実施の形態を図面に基づいて説明する。

【0015】図 1 には、本発明に係る電気二重層キャパ

シタ用電極の部分断面図が示される。図 1 に示される電極は、活性炭粒子 20 と黒鉛粒子 22 とカーボンブラック粒子 24 とを混合して構成されている。前述したように、活性炭粒子 20 の粒径は数 μm ～数十 μm であり、黒鉛粒子 22 の粒径は数 μm 程度であるので、活性炭粒子 20 の粒子間細部までは黒鉛粒子 22 が入り込むことができない。しかし、数十 nm ～数百 nm と粒径が微細であるカーボンブラック粒子 24 は、図 1 に示されるように、活性炭粒子 20 及び黒鉛粒子 22 の粒子間に入り込むことができ、電気二重層キャパシタ用電極の導電性を向上させることができる。

【0016】すなわち、カーボンブラック粒子 24 自体の抵抗率は、黒鉛粒子 22 の抵抗率に比べ高めであるが、粒径の大きい黒鉛粒子 22 と活性炭粒子 20 との間に生じる隙間にカーボンブラック粒子 24 が入り込むことにより、この隙間を埋めることができるので、空間のままでは電荷が移動できない上記隙間において、カーボンブラック粒子 24 が電荷の移動を助けることができる。この結果、黒鉛粒子 22 を単独で活性炭粒子 20 と混合した場合に比べ、電気二重層キャパシタ用電極の電気抵抗を下げるができる。

【0017】本発明において特徴的な点は、黒鉛粒子 22 とカーボンブラック粒子 24 との混合比の最適化を図り、黒鉛及びカーボンブラックの使用量を増やさずに電極の抵抗を下げた点にある。これにより、電極中の活性炭の量を減らさずに済み、電気二重層キャパシタの静電容量を高く維持することができるとともに、内部抵抗も低下させることができ電気二重層キャパシタのエネルギー密度を向上できる。

【0018】本発明者らが鋭意検討した結果、この黒鉛とカーボンブラックとの混合比として、カーボンブラックの割合が 30 ～ 80 重量% となるように調整するのが好適であることを見出した。この場合、カーボンブラックと黒鉛との混合物を電極中に 5 ～ 30 重量% 含ませれば電極の抵抗を十分下げることができる。なお、活性炭をカーボンブラック及び黒鉛と共に結着させるための結着剤としてポリテトラフルオロエチレン等を使用するが、この添加量は電極中に 5 ～ 30 重量% とした。

【0019】以下、上述の実施形態に基づいて作成した電極の例を実施例として説明する。

【0020】実施例。

比表面積 $2400\text{m}^2/\text{g}$ 、平均粒径 $15\mu\text{m}$ の活性炭を 60 重量%、平均粒径 30nm のカーボンブラック及び平均粒径 $5\mu\text{m}$ の黒鉛の混合物を 20 重量%、PTFE を 20 重量% 混ぜ合わせ、湿式混練した後、アルミ箔上に厚さ $100\mu\text{m}$ でフィルム化した。この時の電極の大きさは、一辺が 50mm の正方形とした。このようにして作製した電極に、 0.6mol/l のテトラエチルアンモニウムテトラフルオロホウ酸塩 ($\text{Et}_4\text{NB F}_4$) をプロピレンカーボネート (PC) に溶解させた

電解液を十分含浸させた後、セパレータを介して 2 枚の電極を重ね合わせた。

【0021】このようにして構成した電気二重層キャパシタの両端に 2.5V の電圧を印加して 60 秒間充電を行った後、両端電圧が 2V から 1V になるまで 10mA の定電流放電を行って、その放電時間から充電電荷量 Q を求め、静電容量 C を $C=Q/V$ により算出した。

【0022】なお、集電体から離れている部分の活性炭は印加した電圧よりも $1R$ 分低い電圧しか印加されないため、抵抗が高いほど前述した活性炭へのイオンの吸着性が低下し、静電容量が小さくなり、エネルギー密度も低下すると考えられる。

【0023】また、定電流で 2V まで充電した直後の電圧変化すなわち $1R$ ドロップから電気二重層キャパシタの内部抵抗を求めた。この内部抵抗は、電極の抵抗の高低を反映している。

【0024】図 2 には、本実施例によって作製した電気二重層キャパシタにおいて、電極中の黒鉛とカーボンブラックとの混合割合を変化させた時の、電気二重層キャパシタの容量の変化の様子が示される。また、図 3 には、この電気二重層キャパシタにおいて、黒鉛とカーボンブラックとの混合割合を変化させた時の、内部抵抗の変化の様子が示される。なお、両図において、横軸には黒鉛とカーボンブラックとの混合物中のカーボンブラックの割合が示される。

【0025】図 2 及び図 3 から分かるように、本実施例に係る電極を使用した電気二重層キャパシタにおいては、黒鉛とカーボンブラックとの混合比が、カーボンブラックが 30 ～ 80 重量% である広い範囲にわたって、静電容量が高く内部抵抗が低い特性を有している。しかも、上記範囲において、これら静電容量及び内部抵抗の特性がフラットであるという特徴も併せて有している。更に、これらの特徴は、カーボンブラックの割合が 40 ～ 70 重量% の間において特に顕著に認められる。

【0026】図 4 には、本実施例に係る電気二重層キャパシタにおいて、電極中の黒鉛とカーボンブラックとの混合割合を変化させた時の電気二重層キャパシタのエネルギー密度の変化の様子が示される。具体的には、両端電圧が 1V と 2V の間で、 0.1W/F で充放電させて測定したエネルギー密度が示されている。

【0027】なお、図 4 では、図 2、3 と同様に、横軸に黒鉛とカーボンブラックとの混合物中のカーボンブラックの割合が示される。

【0028】図 4 からわかるように、カーボンブラックの混合割合が 30 ～ 80 重量% の場合に、エネルギー密度も高い値 (11.5J/g 以上) を示している。これは、図 2、図 3 に示されるように、この範囲における電気二重層キャパシタの静電容量が高く、かつ内部抵抗が低いためと考えられる。

【0029】なお、本実施例では、カーボンブラックの

混合割合が40～70重量%の範囲において、電気二重層キャパシタのエネルギー密度が 12 J/g 以上となり、特に高い値を示した。

【0030】以上より、本実施例に係る電気二重層キャパシタは、電極の抵抗が下がり、静電容量が高く維持されて、エネルギー密度が向上していることがわかる。

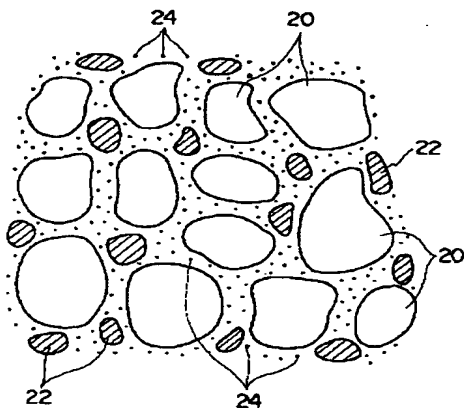
【0031】

【発明の効果】以上説明したように、本発明によれば、導電化材として所定割合の黒鉛とカーボンブラックとを混合して使用することにより、それぞれ単独で導電化材として使用される場合に比べ、電極の抵抗が大幅に減少すると共に静電容量が高く維持される。この結果、電気二重層キャパシタのエネルギー密度を大きく向上させることができる。

【図面の簡単な説明】

【図1】 本発明に係る電気二重層キャパシタ用電極の一実施形態の部分断面図である。

【図1】



【図2】 本発明に係る電極を使用した電気二重層キャパシタの静電容量と電極中に使用される黒鉛とカーボンブラックの混合割合との関係を示す図である。

【図3】 本発明に係る電極を使用した電気二重層キャパシタの内部抵抗と電極中に使用される黒鉛とカーボンブラックの混合割合との関係を示す図である。

【図4】 本発明に係る電極を使用した電気二重層キャパシタのエネルギー密度と電極中に使用される黒鉛とカーボンブラックと混合割合との関係を示す図である。

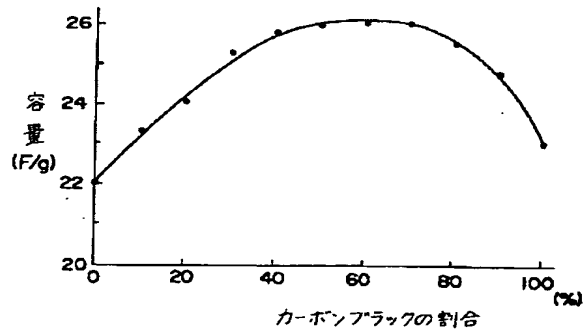
【図5】 従来における電気二重層キャパシタの断面図である。

【図6】 導電化材として黒鉛を単独で用いた場合の電気二重層キャパシタ用電極の部分断面図である。

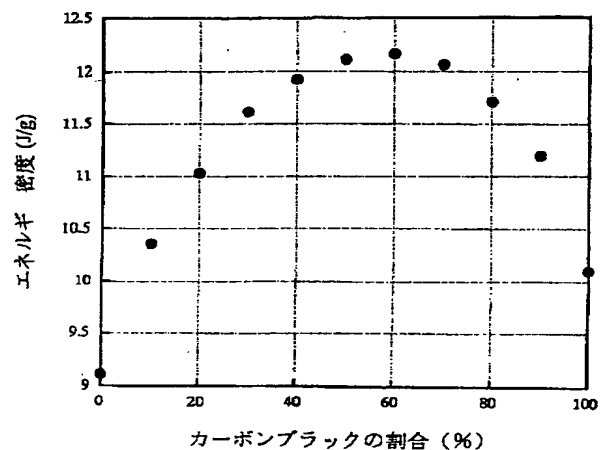
【符号の説明】

10, 12 集電体、14, 16 電極、18 セパレータ、20 活性炭粒子、22 黒鉛粒子、24 カーボンブラック粒子。

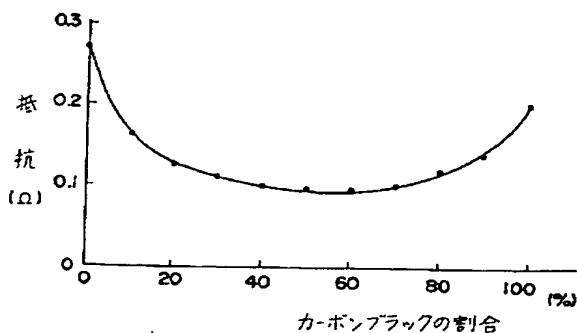
【図2】



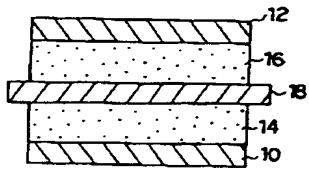
【図4】



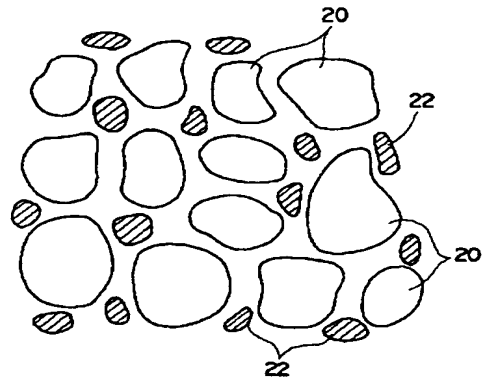
【図3】



【図 5】



【図 6】



JP-A No. 10-4037

(54) [TITLE OF THE INVENTION] ELECTRIC DOUBLE-LAYER CAPACITOR ELECTRODE

(57) [ABSTRACT]

[OBJECT] To provide an electric double-layer capacitor electrode which ensures reduction in internal resistance thereof without reducing electrostatic capacitance and ensures improvement in energy density.

[SOLVING MEANS] A mixture of graphite particles 22 and carbon black particles 24 was mixed together with activated carbon particles 20 when an electric double-layer capacitor electrode is formed. In this case, when the mixing ratio of the graphite particles 22 to the carbon black particles 24 is made to be a predetermined ratio, the resistance of the electrode can be greatly reduced. This renders it possible to reduce the resistance of the electrode and to maintain high electrostatic capacitance of the electric double-layer capacitor even if the amount of a conductivity-improving material is not increased. The energy density can be thereby improved.

[SCOPE OF CLAIM FOR PATENT]

[Claim 1]

An electric double-layer capacitor electrode comprising activated carbon, a conductivity-improving material and a binder, wherein said conductivity-improving material is a mixture of carbon black and graphite contained in an amount of 5 to 30% by weight, and the ratio of the carbon black to the graphite in said mixture is 30 to 80% by weight.

[DETAILED DESCRIPTION OF THE INVENTION]

[0001]

[TECHNICAL FIELD PERTINENT TO THE INVENTION]

The present invention relates to an improvement in an electrode used in an electric double-layer capacitor for storing energy.

[0002]

[CONVENTIONAL ART]

Electric double-layer capacitors make use of an electric double-layer formed at the boundary between an electrode and an electrolytic solution and are used for backup power sources because these capacitors have a relatively large electrostatic capacitance.

[0003]

Fig. 5 shows a sectional view of the structure of a conventional electric double-layer capacitor. In Fig. 5, a pair of current collectors 10 and 12 are disposed and these collectors 10 and 12 are provided with positive and negative electrodes 14 and 16 respectively.

[0004]

These electrodes 14 and 16 respectively have a structure in which activated carbon compounded with a conductivity-improving material that improves the conductivity of the electrode is supported by an aluminum foil used as the current collectors 10 and 12 by using, for example, polytetrafluoroethylene (PTFE) as a binder. A separator 18 is interposed between the positive and negative electrodes 14 and 16, and the electrodes 14 and 16 and the separator 18 are impregnated with an electrolytic solution.

[0005]

An example of the electrode of an electric double-layer capacitor in which

graphite or carbon black is used as a conductivity-improving material is disclosed in the publication of JP-A 62-229819. In this conventional example, graphite or carbon black is used to thereby decrease the resistance of the electrodes 14 and 16, thereby attaining a reduction in the internal resistance of the electric double-layer capacitor.

[0006]

The electrostatic capacitance of such an electric double-layer capacitor is increased by increasing the amount of activated carbon. In addition, if the resistance of the electrode is reduced to decrease internal resistance, the adhesion of ions to activated carbon is improved and this also increases the electrostatic capacitance. In the case of electric double-layer capacitors, higher electrostatic capacitance and lower internal resistance ensure more improved energy density. If energy density can be improved, a small-sized and light-weight electric double-layer capacitor can be attained and such a capacitor is particularly useful for car use.

[0007]

A conductivity-improving material to be used for the electric double-layer capacitor electrode is preferably those capable of reducing the resistance of the electrode without an increase in the amount thereof. This is because if the amount of the conductivity-improving material to be used is reduced, the amount of the activated carbon can be increased that much.

[0008]

[PROBLEMS TO BE SOLVED BY THE INVENTION]

However, carbon black or graphite is used usually singly in the aforementioned electrodes 14 and 16. In the case of carbon black, the

resistance of the carbon black itself is $10^{-1} \Omega\text{cm}$ and therefore, the conductivity is not so high. In order to reduce the internal resistance of the electric double-layer capacitor, it is necessary to increase the amount of the carbon black, giving rise to the problem that the amount of the activated carbon is relatively decreased, leading to reduced electrostatic capacitance.

[0009]

Also, in the case of graphite, a graphite layer forming the graphite is oriented regularly and the resistance of the graphite is as low as 10^{-2} to $10^{-3} \Omega\text{cm}$, so that it has high conductivity. However, the graphite cannot penetrate into minute parts between activated carbon particles because it has a particle diameter of several μm , posing the problem that the resistance of the electrodes 14 and 16 can be insufficiently decreased. This situation is shown in Fig. 6.

[0010]

In Fig. 6, when the activated carbon particles 20 are mixed with graphite particles 22, the graphite particles 22 cannot penetrate into spaces between the activated carbon particles 20 as mentioned above since the particle diameter of the activated carbon is several μm to tens μm whereas the particle diameter of the graphite particles 22 is several μm . Therefore, the contact area between the activated carbon particles 20 and graphite particles 22 can be insufficiently secured. For this, the resistance of the electrodes 14 and 16 is rather higher in the case of blending graphite singly in activated carbon than in the case of blending carbon black singly in activated carbon, with the result that the internal resistance of the electric double-layer capacitor cannot be reduced.

[0011]

To deal with this problem, there is the idea that the particle diameter of the graphite particles 22 is reduced to form microparticles having such a small size as to penetrate into the clearances between the activated carbon particles 20. However, if the graphite particles 22 are micronized by crushing or the like, layer slippage between graphite layers forming graphite arises, which causes the distortion of the graphite structure and the resistance is therefore increased. This is the reason why it is not proper to micronize the graphite particles 22.

[0012]

The present invention has been made in view of the above prior art problems and it is an object of the present invention to provide an electric double-layer capacitor electrode which ensures that the internal resistance of an electric double-layer capacitor can be reduced without any reduction in electrostatic capacitance and energy density can be improved.

[0013]

[MEANS FOR SOLVING THE PROBLEM]

The above object can be attained by an electric double-layer capacitor electrode according to the present invention, the electrode comprising activated carbon, a conductivity-improving material and a binder, wherein the conductivity-improving material is a mixture of carbon black and graphite contained in an amount of 5 to 30% by weight, and the ratio of the carbon black to the graphite in the mixture is 30 to 80% by weight.

[0014]

[EMBODIMENT OF THE INVENTION]

A preferred embodiments of the present invention will be described with reference to the drawings.

[0015]

Fig. 1 shows a partial sectional view of an electric double-layer capacitor electrode according to the present invention. The electrode shown in Fig. 1 is constituted by mixing the activated carbon particles 20, graphite particles 22 and carbon black particles 24. As mentioned above, the particle diameter of the activated carbon particles 20 is several μm to tens μm whereas the particle diameter of the graphite particles 22 is about several μm and the graphite particles 22 cannot penetrate into minute parts between activated carbon particles 20. However, the carbon black particles 24 having a particle diameter as fine as tens nm to hundreds nm can penetrate into spaces between the activated carbon particles 20 and graphite particles 22 as shown in Fig. 1, and the conductivity of the electric double-layer capacitor electrode can be improved.

[0016]

Specifically, the resistance of the carbon black particles 24 themselves is higher than that of the graphite particles 22. However, the carbon black particles 24 penetrate into the clearances produced between the graphite particles 22 having a large particle diameter and the activated carbon particles 20, whereby these clearances can be filled. This enables the carbon black particles 24 to aid charges in moving in the above clearances where these charges could not move if these clearances were not filled with these carbon black particles. As a result, the resistance of the electric double-layer capacitor electrode can be more decreased than in the case of

blending the graphite particles 22 singly in the activated carbon particles 20.

[0017]

The present invention is featured by the point that the mixing ratio of the graphite particles 22 to the carbon black 24 is optimized to drop the resistance of the electrode without increasing the amount of these graphite and carbon black. This precludes the necessity for reducing the amount of activated carbon and makes it possible to maintain high electrostatic capacitance of the electric double-layer capacitor. The internal resistance can also be dropped, improving the energy density of the electric double-layer capacitor.

[0018]

The inventors of the present invention have made earnest studies and found that as to the mixing ratio of graphite to carbon black, the proportion of carbon black is preferably controlled to 30 to 80% by weight. In this case, if a mixture of carbon black and graphite is contained in an amount of 5 to 30% by weight in the electrode, the resistance of the electrode can be dropped sufficiently. A polytetrafluoroethylene or the like is used as a binder that binds the activated carbon with the carbon black and graphite. The amount of the binder is 5 to 30% by weight in the electrode.

[0019]

Examples of electrodes produced based on the above embodiment will be described as an example.

[0020]

EXAMPLE

60% by weight of activated carbon having a specific surface area of 2400 m²/g and average particle diameter of 15 μm, 20% by weight of a mixture of carbon black having an average particle diameter of 30 nm and graphite having an average particle diameter of 5 μm and 20% by weight of PTFE were mixed and kneaded in a wet system. The resulting solution was applied to an aluminum foil to form a film in a thickness of 100 μm. At this time, the electrode is a 50 mm square. The electrode manufactured in this manner was fully impregnated with an electrolytic solution prepared by dissolving 0.6 mol/l of tetraethylammonium tetrafluoroborate (Et₄NBF₄) in propylene carbonate (PC). Then, two electrodes obtained in this manner were laminated through a separator.

[0021]

A voltage of 2.5 V was applied to both terminals of the electric double-layer capacitor constituted in this manner to charge the capacitor for 60 seconds. Then, the capacitor is allowed to discharge under a constant current of 10 mA until the voltage at both terminals was decreased to 1 V from 2 V, to find charge quantity Q from the discharge time, thereby calculating the electrostatic capacitance C from the equation: $C = Q/V$.

[0022]

In this case, only a voltage lower by IR than the applied voltage was applied to an activated carbon part apart from the current collector. It is therefore considered that with increased resistance, the aforementioned adhesion of ions to the activated carbon is reduced, the electrostatic capacitance is decreased and the energy density is likewise decreased.

[0023]

Also, the internal resistance of the electric double-layer capacitor was found from a change in voltage, that is, IR drop just after the capacitor was charged up to 2 V under a constant current. This internal resistance reflects the level of the resistance of the electrode.

[0024]

Fig. 2 shows the condition of a change in the capacity of the electric double-layer capacitor produced in this embodiment when the mixing ratio of graphite to carbon black in the electrode of the capacitor is varied. Fig. 3 shows the condition of a change in the resistance of this electric double-layer capacitor when the mixing ratio of graphite to carbon black in the electrode of the capacitor is varied. In both drawings, the abscissa is the ratio of carbon black in a mixture of graphite and carbon black.

[0025]

As is understood from Figs. 2 and 3, the electric double-layer capacitor using the electrode according to this embodiment is characterized by a high electrostatic capacitance and a low internal resistance in a wide range from 30 to 80% by weight of carbon black in the mixing ratio of graphite to carbon black. The electric double-layer capacitor also has the characteristics that each characteristic curve of the electrostatic capacitance and the internal resistance is flat in the above range. These characteristics are observed significantly when the ratio of carbon black is in a range from 40 to 70% by weight.

[0026]

Fig. 4 shows the condition of a change in the energy density of the electric double-layer capacitor according to this embodiment when the mixing ratio

of graphite to carbon black in the electrode of the capacitor is varied. Specifically, the energy densities measured when the capacitor is charged and discharged at 0.1 W/F when the voltage of both terminals is between 1 V and 2 V are shown.

[0027]

In Fig. 4, like Fig. 2 or 3, the abscissa is the ratio of carbon black in a mixture of graphite and carbon black.

[0028]

As is clear from Fig. 4, a high energy density (11.5 J/g or more) is obtained in the case where the mixing ratio of carbon black is 30 to 80% by weight. This is because, as shown in Figs. 2 and 3, the electrostatic capacitance of the electric double-layer capacitor is high and the internal resistance is low in the above range.

[0029]

In this embodiment, the energy density of the electric double-layer capacitor is 12 J/g or more, which is particularly high value, when the mixing ratio of carbon black is in a range from 40 to 70% by weight.

[0030]

It is found from the above results that the electric double-layer capacitor according to this embodiment is reduced in the resistance of the electrode, a high electrostatic capacitance is maintained and the energy density is improved.

[0031]

[EFFECT OF THE INVENTION]

As described above, the present invention uses graphite and carbon black by

blending them in a predetermined ratio as a conductivity-improving material, which ensures that the resistance of the electrode is reduced more greatly and the electrostatic capacitance of the electrode is kept higher than in the case of using these graphite and carbon black separately as the conductivity-improving material. As a result, the energy density of the electric double-layer capacitor can be improved.

[BRIEF DESCRIPTION OF THE DRAWINGS]

[Fig. 1] A partial sectional view of an embodiment of an electric double-layer capacitor electrode according to the present invention.

[Fig. 2] A view showing the relation between the electrostatic capacitance of an electric double-layer capacitor using an electrode according to the present invention and the mixing ratio of graphite to carbon black used in the electrode.

[Fig. 3] A view showing the relation between the internal resistance of an electric double-layer capacitor using an electrode according to the present invention and the mixing ratio of graphite to carbon black used in the electrode.

[Fig. 4] A view showing the relation between the energy density of an electric double-layer capacitor using an electrode according to the present invention and the mixing ratio of graphite to carbon black used in the electrode.

[Fig. 5] A sectional view of a conventional electric double-layer capacitor.

[Fig. 6] A partial sectional view of an electric double-layer capacitor in the case of using graphite singly as a conductive-improving material.

[EXPLANATION OF SYMBOLS]

10, 12: Current collector, 14, 16: Electrode, 18: Separator, 20: Activated carbon particles, 22: Graphite particles, 24: Carbon black particles.

Fig. 2

1. Capacity
2. Ratio of carbon black

Fig. 3

3. Resistance

Fig. 4

4. Energy density

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☒ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.